

探测光束会聚角对表面等离子体共振 传感器性能的影响

陈鑫麟 肖光宗* 张斌 傅杨颖

(国防科学技术大学光电科学与工程学院, 湖南长沙 410073)

摘要 建立了基于波长调制的 Kretschmann 结构表面等离子体共振 (SPR) 传感器系统中整形光路和探测光斑直径与会聚角关系的理论模型。分析了探测光束会聚角对 SPR 传感器共振波长、共振曲线半峰全宽和共振峰深度的影响。随着探测光束会聚角的减小, 共振波长增大, 共振曲线的半峰全宽减小, 共振峰深度增大, 传感器的抗干扰能力增强, 系统分辨率提高。通过实验对此进行了验证, 考虑会聚角时实验与仿真结果符合得较好; 会聚角从 0.8° 减小到 0° 时, 共振波长从 662 nm 减小到 623 nm, 共振曲线半峰全宽从 157 nm 减小到 117 nm, 共振峰深度从 70.5% 增大到 93.3%。

关键词 传感器; 会聚角; 表面等离子体共振; 反射率

中图分类号 TN253 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/CJL201340.1014001

Influences of the Probe Beam Convergence on the Performance of Surface Plasmon Resonance Sensor

Chen Xinlin Xiao Guangzong Zhang Bin Fu Yangying

(College of Optoelectronic Science and Engineering, National University of Defense Technology, Changsha, Hunan 410073, China)

Abstract In the surface plasmon resonance (SPR) sensor system with Kretschmann configuration based on wavelength modulation technology, the theoretical model of the influence of beam reshaped system and the beam diameter on the convergence angle is built. The influence of convergence angle of probe beam on resonance wavelength, the full width at half maximum (FWHM) and the depth of resonance peak is analyzed. As the convergence angle decreases, the resonance wavelength is enhanced, the FWHM is reduced, and the depth of resonance peak is enhanced. As a result, the capacity of resisting disturbance is enhanced, and the system resolution is enhanced. It is confirmed by experiment, and the experimental result fit well with the simulated one when considering the influence of convergence angle. When the convergence angle varies from 0.8° to 0° , the resonance wavelength varies from 662 nm to 623 nm, the FWHM is reduced from 157 nm to 117 nm, and the depth of resonance peak is enhanced from 70.5% to 93.3%.

Key words sensors; convergence angle; surface plasmon resonance; reflectance

OCIS codes 130.6010; 240.6680

1 引言

表面等离子体共振 (SPR) 是一种发生在金属与电介质分界面的物理光学现象, SPR 传感器对附着

在金属表面的电介质折射率非常敏感, 具有实时监测反映动态过程、生物样品无需标记、灵敏度较高、无背景干扰等优点^[1-3]。目前, SPR 传感器已经实

收稿日期: 2013-03-25; **收到修改稿日期**: 2013-06-03

基金项目: 国家自然科学基金 (61078017)

作者简介: 陈鑫麟 (1990—), 男, 硕士研究生, 主要从事表面等离子体共振传感器方面的研究。

E-mail: xlchencs@163.com

导师简介: 张斌 (1970—), 男, 教授, 硕士生导师, 主要从事新型激光器技术及激光陀螺等方面的研究。

E-mail: kd208zb@sina.com

* **通信联系人**。xiaoguangzong@163.com

现商品化,并被广泛应用于生物化学、医学、环保等领域^[4-7]。

1970年,Kröger等^[8]设计了一种新的表面等离子体共振模型,该模型的出现为表面等离子体共振传感器的生产与应用提供了广阔的前景。波长调制型 Kretschmann 棱镜耦合结构由于具有结构简单、无需转动装置的优点^[9],在目前的实验研究中使用得非常广泛^[10-13]。但波长调制型的 SPR 传感器由于需要使用白光光源,发散角很大,光束质量成为影响传感器灵敏度的一个重要因素。Benahmed等^[14]指出衰减全反射耦合 SPR 传感器的灵敏度、探测范围和最小反射率受发散角的影响,因而很难利用发散角很大的 LED 光源设计出结构紧凑的 SPR 传感器;Zhang等^[15]研究了探测光束的发散角对 SPR 传感器性能的影响,并针对角度调制型 SPR 传感器进行了实验研究;Singh等^[16]分析了宽光谱发散光的 LED 光源对光纤表面等离子体共振传感器的灵敏度、探测精度和信噪比的影响,并比较了基于发散光束和基于准直光束的光纤表面等离子体传感器在性能上的区别。

目前商业化的 SPR 传感器多采用角度调制方式,利用激光器作为单色光源,能够保证很小的发散角,但是由于需要转动装置使其很难达到小型化。美国 Thermo Electron 公司研制的 SPR 100 Module 利用波长调制方式,采用卤钨灯作为光源,其灵敏度远低于 Biacore AB 等公司生产的角度调制型 SPR 传感器,这有可能是由于卤钨灯的准直系统的设计存在困难所导致的。针对这一情况,本文

对波长调制型 Kretschmann 结构 SPR 传感器的整形光路进行了优化设计,建立了光束会聚角的计算模型,并利用理论仿真和实验验证的方法,分析了探测光束的会聚角和光斑直径对 SPR 传感器性能的影响。

2 理论分析

2.1 棱镜耦合 SPR 传感器的基本结构与原理

棱镜耦合 SPR 传感器利用光在棱镜与金属薄膜界面处发生全内反射时渗透到金属薄膜内的倏逝波,引发金属膜的自由电子产生表面等离子体波 (SPW),入射角和波长为某一适当值时,倏逝波和 SPW 匹配(波矢相等),二者将发生共振,入射光被吸收,反射光能量急剧下降,在反射光谱上出现共振吸收峰。当紧靠在金属薄膜表面的介质折射率变化时,共振峰位置将不同。

Kretschmann 型棱镜耦合 SPR 传感器系统的基本结构如图 1 所示,其中 θ_0 表示中心入射角, $\Delta\theta$ 表示入射光的会聚角。SPR 传感器系统主要由三个部分构成,分别是光束整形系统、Kretschmann 系统和光束探测系统。光束整形系统的主要作用是提高光束质量,减小光束的会聚角;Kretschmann 系统是传感器的主要组成部分,其基本结构由半柱面棱镜、铬膜、金膜和待测介质组成,其中铬膜的作用是增强金膜的附着以防止金膜脱落;光束探测系统由聚焦透镜和光栅光谱仪构成,主要是探测传感器的反射率曲线,并对探测信号进行分析处理从而得到传感器的共振波长。

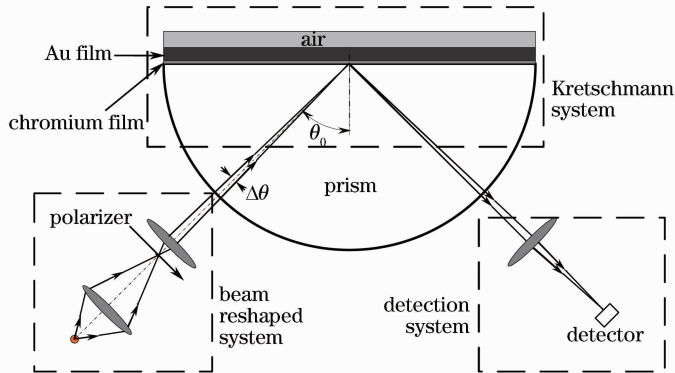


图 1 Kretschmann 型棱镜耦合 SPR 传感器结构图

Fig. 1 Structure of Kretschmann configuration prism coupling-based surface plasmon resonance system

2.2 探测光束会聚角的计算模型

将光源看作是一个点光源,光束经过双透镜系统聚焦于柱面棱镜底部圆心处,由于入射光不是理想的平行光,入射角并不是某一特定值,而是在某一

个范围内变化。整形光路如图 2 所示,其中 f_1, f_2 分别为两个透镜的焦距, D 为系统的孔径光阑,由理想光学系统的物像关系可得

$$\begin{cases} \frac{1}{L_2} + \frac{1}{L_1} = \frac{1}{f_1}, \\ \frac{1}{L_4} + \frac{1}{L_3} = \frac{1}{f_2}, \\ L_4 \times \tan \frac{\theta}{2} = L_3 \times \frac{D}{2L_2}. \end{cases} \quad (1)$$

联立上述方程,可得光束的会聚角为

$$\theta = 2\arctan\left[\frac{D(L_1 - f_1)(L_3 - f_2)}{L_1 f_1 f_2}\right]. \quad (2)$$

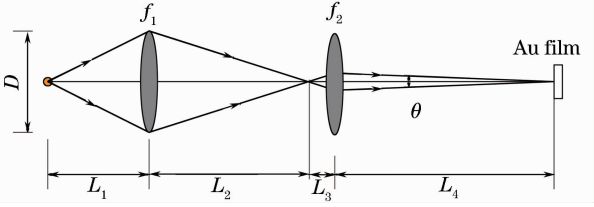


图2 光束整形系统

Fig. 2 Beam reshaped system

实际上不存在理想的点光源,光束不能会聚于一点,而是在棱镜和金膜的交界面上有一个直径为 d 的光斑,这将导致入射光束的会聚角发生变化。入射光路可以近似看作如图3所示的结构,其中 θ_1 和 θ_2 分别表示光束的最小入射角和最大入射角。

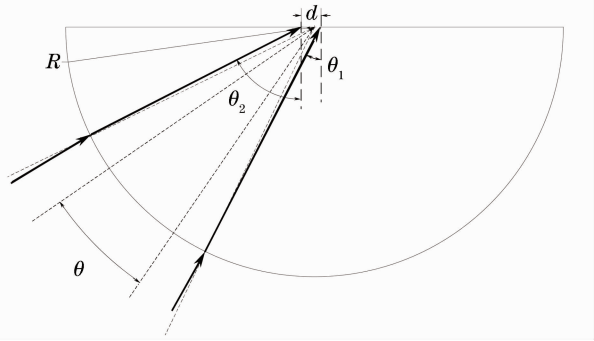


图3 棱镜耦合 SPR 传感器光路图

Fig. 3 Optical path of prism coupling-based surface plasmon resonance sensor

通过计算可推导出会聚角与光斑直径的关系为

$$\Delta\theta = \theta_2 - \theta_1 \approx$$

$$\theta + 2\arcsin\left(\frac{d\cos\theta_0}{2R}n_0\right) - 2\arcsin\left(\frac{d\cos\theta_0}{2R}\right), \quad (3)$$

式中 R 为棱镜的截面半径,中心入射角 $\theta_0 = \frac{\theta_2 + \theta_1}{2}$ 。

2.3 探测光束会聚角对共振曲线的影响

为 SPR 传感器镀金膜前,常常需要在棱镜上镀一层铬膜来防止金膜脱落,因此在进行仿真时需要用到多层膜结构的运算,各层之间的反射系数由下列公式迭代计算:

$$\begin{cases} \gamma_{i(l,3)} = \frac{\gamma_{i(l,l+1)} + \gamma_{i(l+1,3)} \exp(i2\varphi_{l+1})}{1 + \gamma_{i(l,l+1)} \gamma_{i(l+1,3)} \exp(i2\varphi_{l+1})}, \\ l = 0, 1; i = p, s \\ \gamma_{p(l,l+1)} = \frac{n_{l+1} \cos \theta_l - n_l \cos \theta_{l+1}}{n_{l+1} \cos \theta_l + n_l \cos \theta_{l+1}}, l = 0, 1, 2 \\ \gamma_{s(l,l+1)} = \frac{n_l \cos \theta_l - n_{l+1} \cos \theta_{l+1}}{n_l \cos \theta_l + n_{l+1} \cos \theta_{l+1}}, l = 0, 1, 2 \\ \theta_l = \arcsin(n_0 \sin \theta_0 / n_l), l = 1, 2, 3 \\ \varphi_l = 2\pi d_l n_l \cos \theta_l / \lambda, l = 1, 2 \end{cases} \quad (4)$$

式中 n_0 为棱镜的折射率, d_1 和 n_1 为铬膜的厚度和折射率, d_2 和 n_2 为金膜的厚度和折射率, n_3 为待测介质折射率, θ_0 为入射角, p, s 分别代表 p 偏振光和 s 偏振光。

用 p 偏振光的反射光强除以 s 偏振光的反射光强,得到共振光谱曲线 $R(\theta) = \left| \frac{r_{p(0,3)}}{r_{s(0,3)}} \right|^2$ 。当入射光会聚角为 $\Delta\theta$ 时,光束的反射率为整个光斑平面内反射率的平均值:

$$\bar{R} = \frac{1}{\Delta\theta} \int_{-\Delta\theta/2}^{+\Delta\theta/2} R(\theta_0 + \tau) d\tau. \quad (5)$$

由于光束会聚角的影响,将导致反射率曲线各参数发生变化,从而影响传感器的性能。

3 实验与讨论

3.1 实验结果分析

在图1所示的实验光路中,光源为卤钨灯,卤钨灯发出的白光经整形后入射到棱镜耦合 SPR 传感器,然后由凸透镜聚焦耦合入射到光栅光谱仪中,中心入射角为 $\theta_0 = 46^\circ$ 。图中曲线 a 代表 $\Delta\theta = 0^\circ$ 时模拟的共振曲线,曲线 b 代表 $\Delta\theta = 0.8^\circ$ 时模拟的共振曲线,曲线 c 代表实验测得的共振曲线。选用石英材料

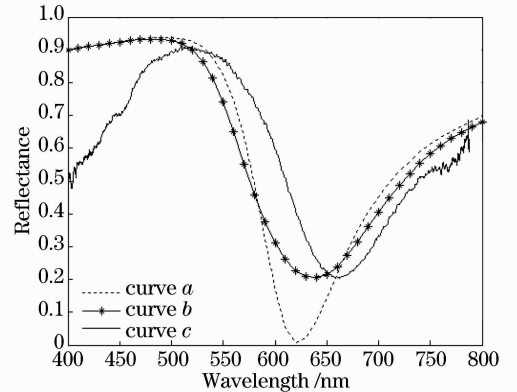


图4 模拟和实验测得的共振曲线

Fig. 4 Simulated and experimental resonance curves

的半圆柱形棱镜,防止入射光与空气/棱镜分界面不垂直时出现的色散现象,棱镜的半径为7.5 mm。在棱镜上先镀一层2 nm的铬膜,再在铬膜上镀50 nm的金膜。实验测得的共振曲线如图4曲线c所示,表征SPR特征的参数分别为:共振波长为662 nm,共振曲线的半峰全宽(FWHM)为157 nm,共振峰深度(表征相对能量的反射率)为70.5%。

取标准状态下空气对可见光的折射率为1.00029,金膜的介电常数为 $\epsilon_m(\lambda) = \epsilon_R + i\epsilon_I = 1 - \frac{\lambda^2 \lambda_c}{\lambda_p^2(\lambda_c + i\lambda)}$,其中 $\lambda_p = 1.6826 \times 10^{-7} \text{ m}$, $\lambda_c = 8.9342 \times 10^{-6} \text{ m}$ ^[17],利用不同波长下棱镜和铬膜折射率数据,不考虑光束会聚角时(光束会聚角为 0°),仿真得到的共振曲线如图4(a)所示,其共振波长为623 nm,共振曲线的半峰全宽为117 nm,共振峰深度为93.3%。与实验结果差距较大,因此需要考虑光束会聚角对传感器参数的影响。

光束整形系统中聚焦透镜的焦距分别为 $f_1 = 200 \text{ mm}$, $f_2 = 10 \text{ mm}$,其孔径分别为 $D_1 = 25 \text{ mm}$, $D_2 = 10 \text{ mm}$,孔径光阑 $D = 25 \text{ mm}$,设定聚焦光路的总长度 $L \leq 1.5 \text{ m}$,由(1)、(2)式计算得到,当 $L_1 = 285 \text{ mm}$, $L_3 = 10.19 \text{ mm}$ 时,会聚角 $\Delta\theta$ 达到最小,为 0.0815° 。在实验过程中,测量得到棱镜底面的光斑直径为 $d = 0.3 \text{ mm}$,由(3)式计算得到光束最小会聚角为 $\Delta\theta = 0.8231^\circ$,在实验中测得光束的会聚角为 0.8° ,与模型计算结果一致。考虑光束会聚角对传感器的影响,当会聚角为 0.8° 时,仿真得到的共振曲线如图4(b)所示,其共振波长为639 nm,共振曲线的半峰全宽为176 nm,共振峰深度为72.8%。相对于不考虑会聚角的情况,会聚角 $\Delta\theta = 0.8^\circ$ 时仿真得到共振曲线的共振波长相对于实测数据的偏差从39 nm减小到23 nm,半峰全宽的偏差从40 nm减小到19 nm,共振峰深度的偏差从22.8%减小到2.3%,仿真数据更接近于实际情况。

仿真曲线的共振波长与实测数据仍有较大差距,可能的原因是角度调整和测量的精度不够高、实验室环境的空气折射率波动或铬膜和金膜的厚度误差。

实验中,中心入射角设为 46° ,实验系统入射角的调整和测量精度约为 0.2° 。中心入射角为 45.8° 时的仿真曲线与实验曲线的对比如图5所示,仿真曲线对应的共振波长为668 nm,与实验曲线共振波长之间的误差仅为6 nm。所以入射角调整和测量误差是实验主要误差之一。

在仿真中所用的空气折射率为1.00029,但在

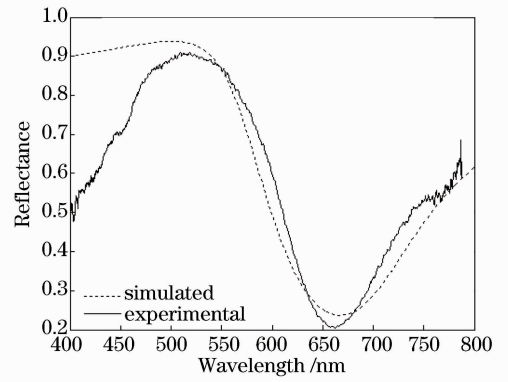


图5 入射角为 45.8° 时的仿真曲线与实验曲线的对比
Fig. 5 Comparison of simulated and experimental curves when $\theta_0 = 45.8^\circ$

具体实验中,可能会由于大气压强、温度、湿度或二氧化碳的含量等因素的变化而导致空气折射率的波动。图6所示为空气折射率为1.00529时的仿真曲线与实验曲线的对比,其中仿真曲线对应的共振波长为661 nm,实验曲线对应的共振波长为662 nm,与实验曲线共振波长之间的误差仅为1 nm。因此,实验室环境的空气折射率波动也是造成实验误差的原因之一。

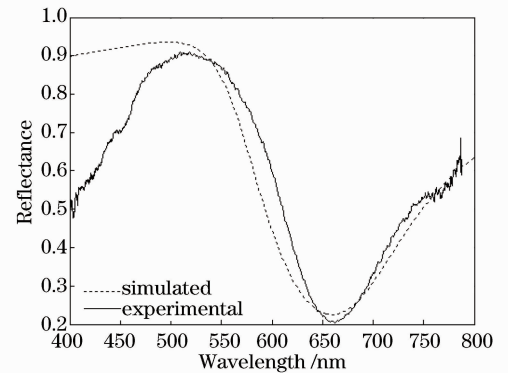


图6 空气折射率为1.00529时的仿真曲线与实验曲线的对比

Fig. 6 Comparison of simulated and experimental curves when the refractive index of air is 1.00529

由于镀膜工艺的影响,铬膜和金膜的厚度存在误差,其中铬膜的厚度误差 $\pm 0.5 \text{ nm}$,金膜的厚度误差为 $\pm 2 \text{ nm}$,其光学常数与固体材料不同,考虑极限情况,假设在52 nm厚的金膜上刻有周期为200 nm、刻蚀深度为4 nm的光栅结构,利用COMSOL软件仿真得到其共振曲线如图7(b)所示。相对于不考虑金膜厚度不均时的仿真曲线[图7(a)],金膜上有光栅结构时共振波长增大了20 nm。因此,金膜厚度不均也是造成仿真得到的共振波长与实测数据之间误差的一个因素。

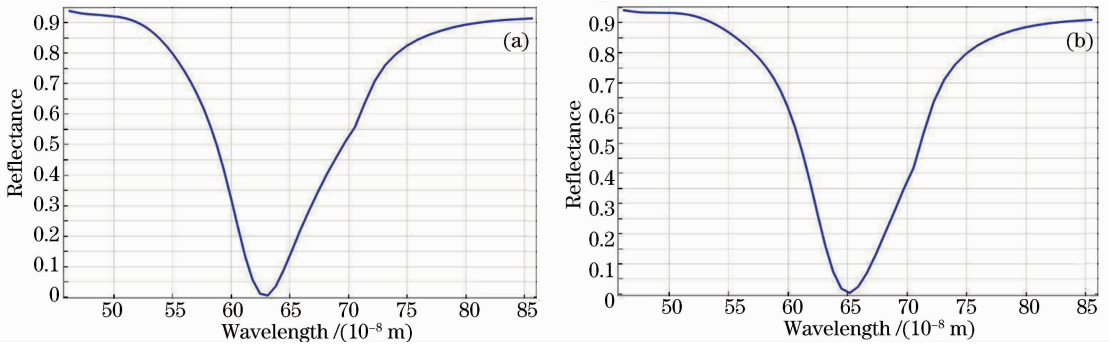


图 7 (a) 不考虑金膜厚度不均时和(b) 金膜上有光栅结构时的共振曲线

Fig. 7 Resonance curves (a) without considering the uneven thickness of Au film and (b) with grating structure on the Au film

3.2 进一步讨论

为进一步讨论探测光束会聚角对 SPR 传感器各参数的影响,模拟了会聚角不同时的共振曲线,其共振波长、半峰全宽、共振峰深度和灵敏度与会聚角的关系如图 8 所示。

由图 8(a)可知,光束会聚角从 0° 增大到 1.5° 时,SPR 传感器的共振波长从 623 nm 增大到 653 nm,呈近似线性关系,斜率为 $21.6 \text{ nm}/(^\circ)$ 。因此,在利用 SPR 传感器共振波长测量介质折射率时,需考虑到光束会聚角所带来的误差。

SPR 传感器的分辨率是指系统能分辨的待测折射率的最小变化量。它主要由传感器的灵敏度(共振波长的变化量与待测介质折射率的变化量之

比)、共振曲线的半峰全宽和共振深度决定。传感器的灵敏度越高,共振曲线的半峰全宽越小,共振峰深度越大,SPR 传感器的抗干扰能力就越强,系统分辨率越高。由图 8(b)、(c)可知,光束会聚角从 0° 增大到 1.5° 时,共振曲线的半峰全宽从 117 nm 增大到 267 nm,呈近似线性关系,斜率为 $91.7 \text{ nm}/(^\circ)$;共振峰深度从 93.3% 下降到 53.4%,呈近似线性关系,斜率为 $28\%/(\circ)$ 。改变空气折射率,测量共振波长的变化情况,可以得到会聚角不同时传感器的灵敏度。由图 8(d)可知,光束会聚角从 0° 变化到 1.5° 时,SPR 传感器的灵敏度变化不大,因此,光束会聚角对 SPR 传感器探测精度的影响主要表现在共振曲线的半峰全宽和共振深度上,且光束会聚角

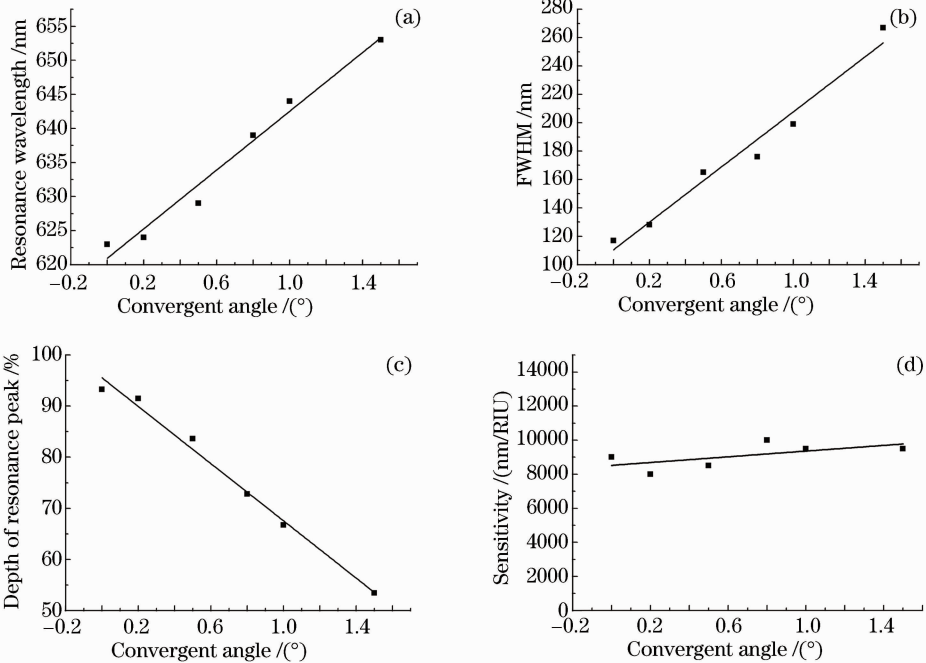


图 8 (a) 共振波长随会聚角的变化曲线;(b) 半峰全宽随会聚角的变化曲线;
(c) 共振峰深度随会聚角的变化曲线;(d) 灵敏度随会聚角的变化曲线

Fig. 8 (a) Resonance wavelength versus convergence angle; (b) FWHM versus convergence angle;
(c) depth of resonance peak versus convergence angle; (d) sensitivity versus convergence angle

越小, SPR 传感器的分辨率越高。在系统搭建过程中,需要通过改善光源性能、对光束整形系统进行优化设计等方法减小光束的会聚角。

4 结 论

对 SPR 传感器光束整形系统进行优化设计,建立了光束会聚角的计算模型,采用该模型计算得到实验系统的探测光束最小会聚角为 $\Delta\theta=0.8231^\circ$ 。实验测得的光束会聚角为 0.8° ,证实了计算模型的正确性。同时,与会聚角为 0° 时相比,会聚角为 0.8° 时仿真得到共振曲线的共振波长相对于实测数据的误差从 39 nm 减小到 23 nm,半峰全宽的误差从 40 nm 减小到 19 nm,共振峰深度的误差从 22.8% 减小到 2.3%。

分析了探测光束会聚角对传感器性能的影响。SPR 传感器的共振波长随光束会聚角的变化而变化,因此在设计 SPR 传感器时需考虑到光束会聚角所带来的误差。同时,随着光束会聚角的减小,共振曲线的半峰全宽减小,共振峰深度增大,这将导致传感器的抗干扰能力增强,系统分辨率提高。可以通过改善光源性能、对光束整形系统进行优化设计等方法来减小光束会聚角,提高 SPR 传感器的分辨率,如选用发光面积小的 LED 等光源,并通过光学系统的设计对其光束进行准直,或采用准直性能好的超连续谱激光器作为光源。

参 考 文 献

- 1 K M Byun, S J Yoon, D H Kim, *et al.*. Experimental study of sensitivity enhancement in surface plasmon resonance biosensors by use of periodic metallic nanowires[J]. *Opt Lett*, 2007, 32(13): 1902-1904.
- 2 R Slavik, J Homda. Ultrahigh resolution long range surface plasmon-based sensor[J]. *Sensors and Actuators B: Chemical*, 2007, 123(1): 10-12.
- 3 Xuan Dou, Blayne M Phillips, Pei-Yu Chung, *et al.*. High surface plasmon resonance sensitivity enabled by optical disks[J]. *Opt Lett*, 2012, 37(17): 3681-3683.
- 4 B Liedberg, C Nylander, I Lunstrom. Surface plasmon resonance for gas detection and biosensing[J]. *Sensors and Actuators*, 1983, 4(1): 299-304.

- 5 R C Mucic, J J Storhoff, C A Mirkin, *et al.*. DNA-directed synthesis of binary nanoparticle network materials[J]. *J Am Chem Soc*, 1998, 120(48): 12674-12675.
- 6 Li Ying, Zhong Jingang, Zhang Yonglin. Fingerprint image acquisition based on surface plasmon resonance imaging[J]. *Chinese J Lasers*, 2006, 33(8): 1143-1147.
李莹, 钟金钢, 张永林. 基于表面等离子体共振成像的指纹采集[J]. *中国激光*, 2006, 33(8): 1143-1147.
- 7 Zhang Mei, Dai Jixiang, Yang Minghong, *et al.*. Fiber-optic surface plasmon resonance hydrogen sensor based on palladium coating[J]. *Chinese J Lasers*, 2011, 38(12): 1205005.
张美, 代吉祥, 杨明红, 等. 基于表面等离子体共振的钯膜氢气传感器[J]. *中国激光*, 2011, 38(12): 1205005.
- 8 E Kröger, E Kretschmann. Scattering of light by slightly rough surfaces or thin films including plasma resonance emission[J]. *Zeitschrift Für Physik*, 1970, 237(1): 1-15.
- 9 J Homola, S S Yee, G Gauglitz. Surface plasmon resonance sensors; review[J]. *Sensors and Actuators B: Chemical*, 1999, 54(1-2): 3-15.
- 10 Ming Bao, Ge Li, Dongmei Jiang, *et al.*. Surface plasmon optical sensor with enhanced sensitivity using top ZnO thin film[J]. *Appl Phys A*, 2012, 107(2): 279-283.
- 11 Edy Wijaya, Cédric Lenaerts, Sophie Maricot, *et al.*. Surface plasmon resonance-based biosensors; from the development of different SPR structures to novel surface functionalization strategies[J]. *Current Opinion in Solid State and Materials Science*, 2011, 15(5): 208-224.
- 12 Chen Qianghua, Luo Huifu, Wang Sumei, *et al.*. Measurement of air refractive index based on surface plasmon resonance and phase detection by dual-frequency laser interferometry[J]. *Chinese J Lasers*, 2013, 40(1): 0108001.
陈强华, 罗会甫, 王素梅, 等. 基于表面等离子体共振和双频激光干涉相位测量的空气折射率测量[J]. *中国激光*, 2013, 40(1): 0108001.
- 13 Peng Yang, Hou Jing, Huang Zhihe, *et al.*. Using surface plasmon resonance to control the reflection index of mirror[J]. *Acta Optica Sinica*, 2012, 32(1): 0124001.
彭杨, 侯静, 黄值河, 等. 表面等离子体共振控制镜面反射率[J]. *光学学报*, 2012, 32(1): 0124001.
- 14 Arnaud J Benahmed, Chih-Ming Ho. Bandgap-assisted surface-plasmon sensing[J]. *Appl Opt*, 2007, 46(16): 3369-3375.
- 15 Yingying Zhang, Jiancheng Lai, Cheng Yin, *et al.*. The influences of the probe beam divergence on the performance of imaging surface plasmon resonance sensors[J]. *Opt & Lasers in Eng*, 2008, 46(9): 635-642.
- 16 Sarika Singh, R K Verma, B D Gupta. LED based fiber optic surface plasmon resonance sensor[J]. *Opt Quantum Electron*, 2010, 42(1): 15-28.
- 17 M A Ordal, L L Long, R J Bell, *et al.*. Optical properties of metals Al, Co, Cu, Au, Fe, Pb, Ni, Pd, Pt, Ag, Ti, and W in the infrared and far infrared[J]. *Appl Opt*, 1983, 22(7): 1099-1119.

栏目编辑: 韩峰